

(19) 【発行国】 日本国特許庁 (J P)

(12) 【公報種別】 公開特許公報 (A)

(11) 【公開番号】 特開平 1 1 - 1 5 8 1 8 0

(43) 【公開日】 平成 1 1 年 ( 1 9 9 9 ) 6 月 1 5 日

(54) 【発明の名称】 縮合複素環誘導体及びその中間体並びに有害生物防除剤

(51) 【国際特許分類第 6 版】

C07D471/04 117

118

A01N 43/90 103

104

105

C07D475/00

487/04 143

148

491/048

495/04 105

498/04 105

513/04 351

【 F I 】

C07D471/04 117 N

117 Z

118 Z

A01N 43/90 103

104

(19) [Publication Office] Japanese Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document] Japan Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application] Japan Unexamined Patent Publication Hei 11 - 158180

(43) [Publication Date of Unexamined Application] 1999 (1999) June 15 day

(54) [Title of Invention] CONDENSED HETEROCYCLE DERIVATIVE AND THAT INTERMEDIATE AND PEST CONTROL AGENT

(51) [International Patent Classification 6th Edition]

C07D471/04 117

118

A01N 43/90 103

104

105

C07D475/00

487/04 143

148

491/048

495/04 105

498/04 105

513/04 351

[FI]

C07D471/04 117 N

117 Z

118 Z

A01N 43/90 103

104

105

C07D475/00

487/04 143

148

491/048

495/04 105 Z

498/04 105

513/04 351

【審査請求】未請求

【請求項の数】5

【出願形態】F D

【全頁数】14

(21) 【出願番号】特願平9-344497

(22) 【出願日】平成9年(1997)11月29日

(71) 【出願人】

【識別番号】000232623

【氏名又は名称】日本農薬株式会社

【住所又は居所】東京都中央区日本橋1丁目2番5号

(72) 【発明者】

【氏名】上原 正浩

【住所又は居所】大阪府堺市丈六115-12

(72) 【発明者】

【氏名】坂田 和之

【住所又は居所】大阪府河内長野市本多町5-6-301

(72) 【発明者】

【氏名】森本 雅之

【住所又は居所】大阪府河内長野市西之山町1-28-

105

C07D475/00

487/04 143

148

491/048

495/04 105 Z

498/04 105

513/04 351

[Request for Examination] Examination not requested

[Number of Claims] 5

[Form of Application] Floppy disk

[Number of Pages in Document] 14

(21) [Application Number] Japan Patent Application Hei 9 - 344497

(22) [Application Date] 1997 (1997) November 29 day

(71) [Applicant]

[Applicant Code] 000232623

[Name] NIHON NOHYAKU CO. LTD. (DB 69-056-8290)

[Address] Tokyo Chuo-ku Nihonbashi 1-2-5

(72) [Inventor]

[Name] Uehara Masahiro

[Address] Osaka Prefecture Sakai City height six 115 - 12

(72) [Inventor]

[Name] Sakata Kazuyuki

[Address] Osaka Prefecture Kawachinagano City Honda Cho 5 - 6 - 301

(72) [Inventor]

[Name] Morimoto Masayuki

[Address] Osaka Prefecture Kawachinagano City west Itaru crest

305

(72) 【発明者】

【氏名】瀬尾 明

【住所又は居所】和歌山県橋本市紀見ヶ丘 2-3-19

(74) 【代理人】

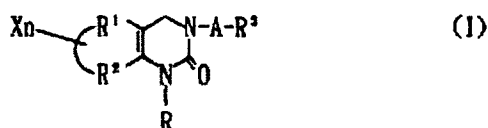
【弁理士】

(57) 【要約】

【解決手段】 下記式で示される 1, 2, 3-チアジアゾール誘導体 (I) の製造

【請求項 1】 一般式 (I)

【化 1】



【式中、RはH、(ハロ) C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル、(ハロ) C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル、(ハロ) C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル、-C(=O)N(R<sup>4</sup>)R<sup>5</sup> (R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>はHC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル等)、(置換)フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル等、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>はO、S、Nから選択される1~3個のヘテロ原子により中断された5~6員複素環、XはH、ハロゲン、シアノ、ニトロ、(ハロ) C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル等、nは0~3、Aは-NH-CH<sub>2</sub>-, -N=CH-, R<sup>3</sup>は(置換)ピリジル又はそのN-オキシド等]で表される縮合複素環誘導体又はその塩類、該化合物を有効成分とする有害生物防除剤。

【効果】 水稻、野菜、果樹、その他の作物及び花卉等を加害する各種農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等の害虫防除に適する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一般式 (I)

town 1 - 28 - 305

(72) [Inventor]

[Name] Seo discernment

[Address] Wakayama Prefecture Hashimoto City period seeing hill 2 - 3 - 19

(74) [Attorney(s) Representing All Applicants]

[Patent Attorney]

(57) [Abstract]

[Means of Solution] Is shown with below-mentioned formula production of 1,2,3 - thiadiazole derivative (I) which

[Claim 1] General Formula (I)

[Chemical Formula 1]

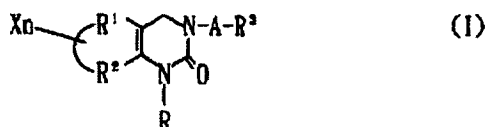
(The inside of Formula, As for R H, ( halo- ) C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl, ( halo- ) C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl, ( halo- ) C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl, -C(=O)N(R<sup>4</sup>)R<sup>5</sup> (As for R<sup>4</sup> and R<sup>5</sup> such as HC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl and C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl), As for R<sup>1</sup> and R<sup>2</sup> such as (substituted) phenyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl as for 5 to 6-member heterocycle and the X which are discontinued by heteroatom of 1 to 3 which is selected from O, S and N, as for n as for 0 to 3 and A -NH-CH<sub>2</sub>-, -N=CH-, as for R<sup>3</sup> the pest control agent which such as H designates condensed heterocycle derivative or its salt and said compound which are displayed with (substituted) pyridyl or N - oxide etc) as effective component, halogen, cyano, nitro and ( halo- ) C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl.

[Effect(s)] Various Norin which rice, vegetable, fruit tree, other crop and ornamental flower etc adding are harmed, it is suited for horticulture, the stored grain insect and hygienically harmful insect or nematode or other pest elimination.

[Claim(s)]

[Claim 1] General Formula (I)

## 【化 1】



〔式中、Rは水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、-C(=O)N(R<sup>4</sup>)R<sup>5</sup> (式中、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>

は同一又は異なっても良く、水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、フェニル基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニル基を示す。)フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、フェニルカルボニル基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニルカルボニル基を示す。R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>はお互いに一緒になって、同一又は異なっても良い酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1~3個のヘテロ原子により中断された5~6員複素環を示し、Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される置換基を示す。nは0から3の整数を示す。Aは-NH-CH<sub>2</sub>-又は-N=CH-を示し、R<sup>3</sup>はピリジル基又はそのN-オキシド基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を有するピリジル基又はそのN-オキシド基、チアゾール基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル

## [Chemical Formula 1]

(The inside of Formula, As for R hydrogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, halo-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, halo-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl carbonyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy carbonyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl sulfonyl group, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub> cycloalkyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, -C(=O)N(R<sup>4</sup>)R<sup>5</sup> (In Formula, R<sup>4</sup> and R<sup>5</sup> alike or different is good, phenyl group which possesses the substituent of 1 to 3 to which also hydrogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, the C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, phenyl group, or identical or different are good, are selected from halogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, the or halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group with respect to ring is shown. ), phenyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, alike or different good, phenyl carbonyl group which possesses substituent of 1 to 3 to which also the phenyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, phenyl carbonyl group, or identical or different which possess substituent of the 1 to 3 which is selected from halogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, the C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, or halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group with respect to ring are good, are selected from halogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, the C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, or halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group with respect to ring is shown. As for R<sup>1</sup> and R<sup>2</sup> mutually simultaneous becoming, 5 to 6-member heterocycle which is discontinued by heteroatom of 1 to 3 which is selected from oxygen atom, sulfur atom or nitrogen atom where also alike or different is good is shown, substituent to which X alike or different is good, is selected from hydrogen atom, halogen atom, cyano group, nitro group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, the halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, halo-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, halo-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, the halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, or halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group is shown. n shows integer of 0 to 3. A to show -NH-CH<sub>2</sub>- or -N=CH-, As for R<sup>3</sup> pyridyl group or N-oxide group, alike or different good, halogen atom, cyano group, nitro group, thiazole radical which possesses substituent of 1 to 2 to which pyridyl group which possesses substituent of 1 to 3 which is selected from the C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, or the halo-

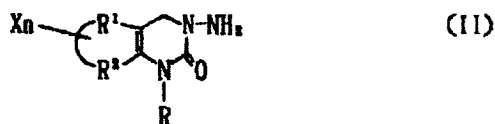
基、 $C_1-C_3$  アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$  アルコキシ基、 $C_1-C_3$  アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$  アルキルチオ基から選択される1~2個の置換基を有するチアゾール基を示す。) で表される縮合複素環誘導体又はその塩類。

【請求項2】  $R^1$  及び  $R^2$  がお互いに一緒になって形成する複素環が、ピリジン環又はピリミジン環である請求項1記載の縮合複素環誘導体又はその塩類。

【請求項3】 請求項1及び2のいずれか一項記載の縮合複素環誘導体又はその塩類を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤。

【請求項4】 一般式(II)

【化2】



【式中、Rは水素原子、 $C_1-C_3$ アルキル基、ハロ $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_2-C_4$ アルケニル基、ハロ $C_2-C_4$ アルケニル基、 $C_2-C_4$ アルキニル基、ハロ $C_2-C_4$ アルキニル基、 $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_3$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基、 $C_1-C_3$ アルキルカルボニル基、 $C_1-C_3$ アルコキシカルボニル基、 $C_1-C_3$ アルキルスルホニル基、 $C_3-C_6$ シクロアルキル $C_1-C_3$ アルキル基、 $-C(=O)N(R^4)R^5$  (式中、 $R^4$  及び  $R^5$  は同一又は異なっても良く、水素原子、 $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_2-C_4$ アルケニル基、 $C_2-C_4$ アルキニル基、フェニル基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_3$ アルキル基、ハロ $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_3$ アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニル基を示す。)、フェニル $C_1-C_3$ アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_3$ アルキル基、ハロ $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_3$ アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニル基を示す。)

$C_1-C_3$  alkyl thio group or N - oxide group, also thiazole radical, or identical or different are good, are selected from halogen atom, cyano group, nitro group,  $C_1-C_3$  alkyl group, the halo-  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo-  $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, or halo-  $C_1-C_3$  alkyl thio group is shown. ) With condensed heterocycle derivative or its salt which are displayed.

[Claim2]  $R^1$  and  $R^2$  becoming mutually simultaneous, heterocycle which is formed, the condensed heterocycle derivative or its salt which are stated in Claim 1 which is a pyridine ring or a pyrimidine ring.

[Claim3] It contains condensed heterocycle derivative or its salt which are stated in any Claim of Claims 1 and 2 as the active ingredient pest control agent which densely is made feature.

[Claim4] General Formula (II)

[Chemical Formula 2]

(The inside of Formula, As for R hydrogen atom,  $C_1-C_3$  alkyl group, halo-  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_2-C_4$  alkenyl group, halo-  $C_2-C_4$  alkenyl group,  $C_2-C_4$  alkynyl group, halo-  $C_2-C_4$  alkynyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo-  $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, halo-  $C_1-C_3$  alkyl thio group,  $C_1-C_3$  alkyl carbonyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy carbonyl group,  $C_1-C_3$  alkyl sulfonyl group,  $C_3-C_6$  cycloalkyl  $C_1-C_3$  alkyl group,  $-C(=O)N(R^4)R^5$  (In Formula,  $R^4$  and  $R^5$  alike or different is good, phenyl group which possesses the substituent of 1 to 3 to which also hydrogen atom,  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_2-C_4$  alkenyl group, the  $C_2-C_4$  alkynyl group, phenyl group, or identical or different are good, are selected from halogen atom,  $C_1-C_3$  alkyl group, halo-  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo-  $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, the or halo-  $C_1-C_3$  alkyl thio group with respect to ring is shown. ), phenyl  $C_1-C_3$  alkyl group, Also alike or different is good, phenyl carbonyl group which possesses substituent of the 1 to 3 to

$C_1-C_3$  アルキルチオ基又はハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニル $C_1-C_3$ アルキル基、フェニルカルボニル基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_3$  アルキル基、ハロ $C_1-C_3$  アルキル基、 $C_1-C_3$  アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$  アルコキシ基、 $C_1-C_3$  アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$  アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニルカルボニル基を示す。 $R^1$  及び $R^2$  はお互いに一緒になって、同一又は異なっても良い酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1~3個のヘテロ原子により中断された5~6員複素環を示し、Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_3$  アルキル基、ハロ $C_1-C_3$  アルキル基、 $C_2-C_4$ アルケニル基、ハロ $C_2-C_4$  アルケニル基、 $C_2-C_4$ アルキニル基、ハロ $C_2-C_4$  アルキニル基、 $C_1-C_3$  アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$  アルコキシ基、 $C_1-C_3$  アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$  アルキルチオ基から選択される置換基を示す。 $n$ は0~3の整数を示す。)で表される化合物。

[請求項5]  $R^1$  及び $R^2$  がお互いに一緒になって形成する複素環が、ピリジン環又はピリミジン環である請求項4記載の化合物。

#### [発明の詳細な説明]

[0001]

[発明の属する技術分野] 本発明は、有害生物防除剤として有用な新規な縮合複素環誘導体及びその用途並びにその中間体に関するものである。

[0002]

[従来の技術] 特開平1-132580号公報、同2-290871号公報、同6-234748号公報及び同8-325239号公報にトリアジノン誘導体、イミダゾール誘導体又はキナゾリン誘導体が有害生物防除剤として有用であることが開示されている。

[0003]

[発明が解決しようとする課題] 本発明者等は新規な有害生物防除剤を創出すべく鋭意研究を重ねた結果、本発

which also phenyl  $C_1-C_3$  alkyl group, phenyl carbonyl group, or identical or different which possess substituent of 1 to 3 which is selected from halogen atom, the  $C_1-C_3$  alkyl group, halo- $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo- $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group or halo- $C_1-C_3$  alkyl thio group with respect to ring are good, are selected from halogen atom,  $C_1-C_3$  alkyl group, the halo- $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo- $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, or halo- $C_1-C_3$  alkyl thio group with respect to ring is shown. As for  $R^1$  and  $R^2$  mutually simultaneous becoming, 5 to 6-member heterocycle which is discontinued by heteroatom of 1 to 3 which is selected from oxygen atom, sulfur atom or nitrogen atom where also alike or different is good is shown, substituent to which X alike or different is good, is selected from hydrogen atom, halogen atom, cyano group, nitro group,  $C_1-C_3$  alkyl group, the halo- $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_2-C_4$  alkenyl group, halo- $C_2-C_4$  alkenyl group,  $C_2-C_4$  alkynyl group, halo- $C_2-C_4$  alkynyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, the halo- $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, or halo- $C_1-C_3$  alkyl thio group is shown.  $n$  shows integer of 0 to 3. ) With compound which is displayed.

[Claim 5]  $R^1$  and  $R^2$  becoming mutually simultaneous, heterocycle which is formed, the compound which is stated in Claim 4 which is a pyridine ring or a pyrimidine ring.

#### [Description of the Invention]

[0001]

[Technological Field of Invention] This invention is useful novel condensed heterocycle derivative and its application and something regarding intermediate as pest control agent.

[0002]

[Prior Art] Japan Unexamined Patent Publication Hei 1-132580 disclosure and same 2-290871 disclosure, thioridazine derivative, imidazole derivative or quinazoline derivative it is useful in same 6-234748 disclosure and same 8-325239 disclosure as pest control agent, it is disclosed densely.

[0003]

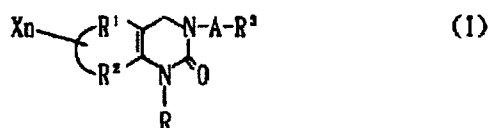
[Problems to be Solved by the Invention] In order that this inventor etc creates novel pest control agent, result of diligent

明の一般式(I)で表される複素環誘導体及び該化合物を製造するための中間体である一般式(II)で表される化合物は文献未記載の新規化合物であり、更に一般式(I)で表される複素環誘導体は各種害虫に対して低薬量で優れた効果を有するものであることを見出し、本発明を完成させたものである。

[0004]

[課題を解決するための手段] 本発明は一般式(I)

[化3]



〔式中、Rは水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、-C(=O)N(R<sub>4</sub>)R<sub>5</sub> (式中、R<sub>4</sub>及びR<sub>5</sub>

は同一又は異なっても良く、水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>アルキニル基、フェニル基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニル基を示す。)

[0005] フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、フェニルカルボニル基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基、又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルキルチオ基から選択される1~3個の置換基を環上に有するフェニルカルボニル基を示す

research, compound which is displayed with General Formula (II) which is a intermediate in order to produce heterocyclic derivative and said compound which are displayed with General Formula (I) of this invention with novel compound of unrecorded in the literature, furthermore heterocyclic derivative which is displayed with General Formula (I) is something which possesses effect which is superior in low dose vis-a-vis various insect pest, it is something which discovers densely, completes this invention.

[0004]

[Means to Solve the Problems] As for this invention General Formula (I)

[Chemical Formula 3]

(In Formula, as for R hydrogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, halo-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, halo-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl carbonyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy carbonyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl sulfonyl group, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub> cycloalkyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group and -C(=O)N(R<sub>4</sub>)R<sub>5</sub> (In Formula, R<sub>4</sub> and R<sub>5</sub> alike or different is good, phenyl group which possesses the substituent of 1 to 3 to which also hydrogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkenyl group, the C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub> alkynyl group, phenyl group, or identical or different are good, are selected from halogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, the or halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group with respect to ring is shown. ),

[0005] Also phenyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group and alike or different are good, phenyl carbonyl group which possesses the substituent of 1 to 3 to which also phenyl C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, phenyl carbonyl group, or the identical or different which possess substituent of 1 to 3 which is selected from the halogen atom, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group or the halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group with respect to ring are good, are selected from halogen atom, the C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkoxy group, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> alkyl thio group, or the halo-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>

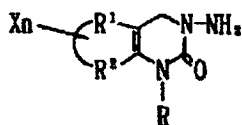
alkyl thio group with respect to ring is shown.

【0006】 $R^1$  及び  $R^2$  はお互いに一緒になって、同一又は異なっても良い酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1～3個のヘテロ原子により中断された5～6員複素環を示し、Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_3$ アルキル基、ハロ $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_2-C_4$ アルケニル基、ハロ $C_2-C_4$ アルケニル基、 $C_2-C_4$ アルキニル基、ハロ $C_2-C_4$ アルキニル基、 $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_3$ アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基から選択される置換基を示す。nは0～3の整数を示す。

【0007】Aは-NH-CH<sub>2</sub>-又は-N=CH-を示し、 $R^3$ はピリジル基又はそのN-オキシド基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_3$ アルキル基、ハロ $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_3$ アルキルチオ基又はハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基から選択される1～3個の置換基を有するピリジル基又はそのN-オキシド基、チアゾール基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_3$ アルキル基、ハロ $C_1-C_3$ アルキル基、 $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_3$ アルキルチオ基、又はハロ $C_1-C_3$ アルキルチオ基から選択される1～3個の置換基を有するチアゾール基を示す。]で表される縮合複素環誘導体及び該縮合複素環誘導体を有効成分として含有する有害生物防除剤、並びに該縮合複素環誘導体を製造するための中間体化合物である一般式(II)

【0008】

【化4】



(II)

〔式中、R、 $R^1$ 、 $R^2$ 、X及びnは前記に同じ。〕で表される化合物に関するものである。

【0009】本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体又はその塩は、その化学構造上、互変異性体を有

[0006] As for  $R_1$  and  $R_2$  mutually simultaneous becoming, 5 to 6-member heterocycle which is discontinued by heteroatom of 1 to 3 which is selected from oxygen atom, sulfur atom or nitrogen atom where also alike or different is good is shown, substituent to which X alike or different is good, is selected from hydrogen atom, halogen atom, cyano group, nitro group,  $C_1-C_3$  alkyl group, the halo-  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_2-C_4$  alkenyl group, halo-  $C_2-C_4$  alkenyl group,  $C_2-C_4$  alkynyl group, halo-  $C_2-C_4$  alkynyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, the halo-  $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, or halo-  $C_1-C_3$  alkyl thio group is shown. n shows integer of 0 to 3.

[0007] A to show -NH-CH<sub>2</sub>- or -N=CH-, As for  $R_3$  pyridyl group or N-oxide group, alike or different good, halogen atom, cyano group, thiazole radical which possesses substituent of 1 to 3 to which pyridyl group which possesses substituent of 1 to 3 which is selected from the nitro group,  $C_1-C_3$  alkyl group, halo-  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo-  $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group or the halo-  $C_1-C_3$  alkyl thio group or N-oxide group, also thiazole radical, or identical or different are good, are selected from halogen atom, cyano group, nitro group,  $C_1-C_3$  alkyl group, the halo-  $C_1-C_3$  alkyl group,  $C_1-C_3$  alkoxy group, halo-  $C_1-C_3$  alkoxy group,  $C_1-C_3$  alkyl thio group, or halo-  $C_1-C_3$  alkyl thio group is shown. ) With it is a intermediate compound in order to produce pest control agent, and said condensed heterocycle derivative which contain condensed heterocycle derivative and said condensed heterocycle derivative which are displayed as effective component the General Formula (II)

[0008]

[Chemical Formula 4]

(In Formula, as for R,  $R_1$ ,  $R_2$ , X and n same to description above. ) With it is something regarding compound which is displayed.

[0009] As for condensed heterocycle derivative or its salt which is displayed with General Formula (I) of this invention, on the



するものであり、本発明はこれらの互変異性体も包含するものである。また、これらの化合物と無機または有機の酸との塩も包含するものである。

## 【0010】

【発明の実施の形態】本発明の一般式(I)で表される縮合複素環誘導体は、その各置換基の定義中、『ハロゲン原子』とは塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子またはフッ素原子を示し、『 $C_1-C_3$  アルキル基』とは、炭素原子数1~3の直鎖状又は分枝状のアルキル基を示し、例えばメチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル等を示すものとする。『ハロ $C_1-C_3$  アルキル基』とは、1以上の同一又は異なっても良いハロゲン原子で置換された炭素原子数1~3の直鎖状又は分枝状のアルキル基を示し、『 $C_2-C_4$  アルケニル基』とは、1以上の2重結合を有する炭素原子数2~4の直鎖状又は分枝状のアルケニル基を示し、例えばビニル、アリル、イソプロベニル、1-メチルプロベニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル等を示し、『ハロ $C_2-C_4$  アルケニル基』とは、1以上の同一又は異なっても良いハロゲン原子で置換された炭素原子数2~4の直鎖状又は分枝状のアルケニル基を示す。『 $C_2-C_4$  アルキニル基』とは、1以上の3重結合を有する炭素原子数2~4の直鎖状又は分枝状のアルキニル基を示し、例えば、エチニル、2-プロピニル、1-メチル-2-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル、3-ブチニル等を示し、『ハロ $C_2-C_4$  アルキニル基』とは、1以上の同一又は異なっても良いハロゲン原子で置換された炭素原子数2~4の直鎖状又は分枝状のアルキニル基を示し、

【0011】『同一又は異なっても良い酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1~3個のヘテロ原子により中断された5~6員複素環』とは、例えば、フラン、チオフェン、ピロール、オキサゾール、イソキサゾール、チアゾール、イソチアゾール、ピラゾール、イミダゾール、1,2,3-チアジアゾール、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン等の5~6員環を示すものとする。

【0012】本発明の一般式(I)で表される縮合複素環誘導体は、例えば下記に示す製造方法により、中間体である一般式(II)で表される化合物を経て製造することができる。まず、本発明の中間体である一般式(II)で表される化合物は、例えば下記に示す製造方法により製造することができる。

chemical structure, being something which possesses tautomer, as for this invention it is something which also these tautomer include. In addition, it is something which also salt of these compound and the acid of inorganic or organic includes.

## [0010]

[Embodiment of Invention] Condensed heterocycle derivative which is displayed with General Formula (I) of this invention, while defining each substituent, "halogen atom" with shows chlorine atom, the bromine atom, iodine atom or fluorine atom, "C1-C3 alkyl group" with, shows alkyl group of the number of carbon atoms 1 to 3 straight chain or branched, show for example methyl, ethyl, *n*-propyl and *i*-propyl etc. "halo-C1-C3 alkyl group" with, alkyl group of number of carbon atoms 1 to 3 straight chain or branched which is substituted with halogen atom where also the alike or different of 1 or more is good is shown, "C2-C4 alkenyl group" with, alkenyl group of straight chain or branched of number of carbon atoms 2 to 4 which possesses double bond of 1 or more is shown, for example vinyl, allyl, isopropenyl, 1-methyl propenyl, 1-butenyl, the 2-butenyl and 3-butenyl etc are shown, "halo-C2-C4 alkenyl group" with, alkenyl group of the straight chain or branched of number of carbon atoms 2 to 4 which is substituted with halogen atom where also the alike or different of 1 or more is good is shown. "C2-C4 alkynyl group" with, alkynyl group of straight chain or branched of number of carbon atoms 2 to 4 which possesses triple bond of 1 or more is shown, for example ethynyl, 2-propynyl and the 1-methyl-2-propynyl, 1-butylnyl, 2-butylnyl and 3-butylnyl etc are shown, "halo-C2-C4 alkynyl group" with, alkynyl group of straight chain or branched of number of carbon atoms 2 to 4 which is substituted with halogen atom where also alike or different of 1 or more is good showing,

[0011] "5 to 6-member heterocycle which is discontinued by heteroatom of 1 to 3 which is selected from oxygen atom, sulfur atom or nitrogen atom where also alike or different is good" with, show for example furan, thiophene, pyrrole, oxazole, the isoxazole, thiazole, isothiazole, pyrazole, imidazole, 1,2,3-thiadiazole, the pyridine, pyridazine, pyrimidine and pyrazine or other 5 to 6-member ring.

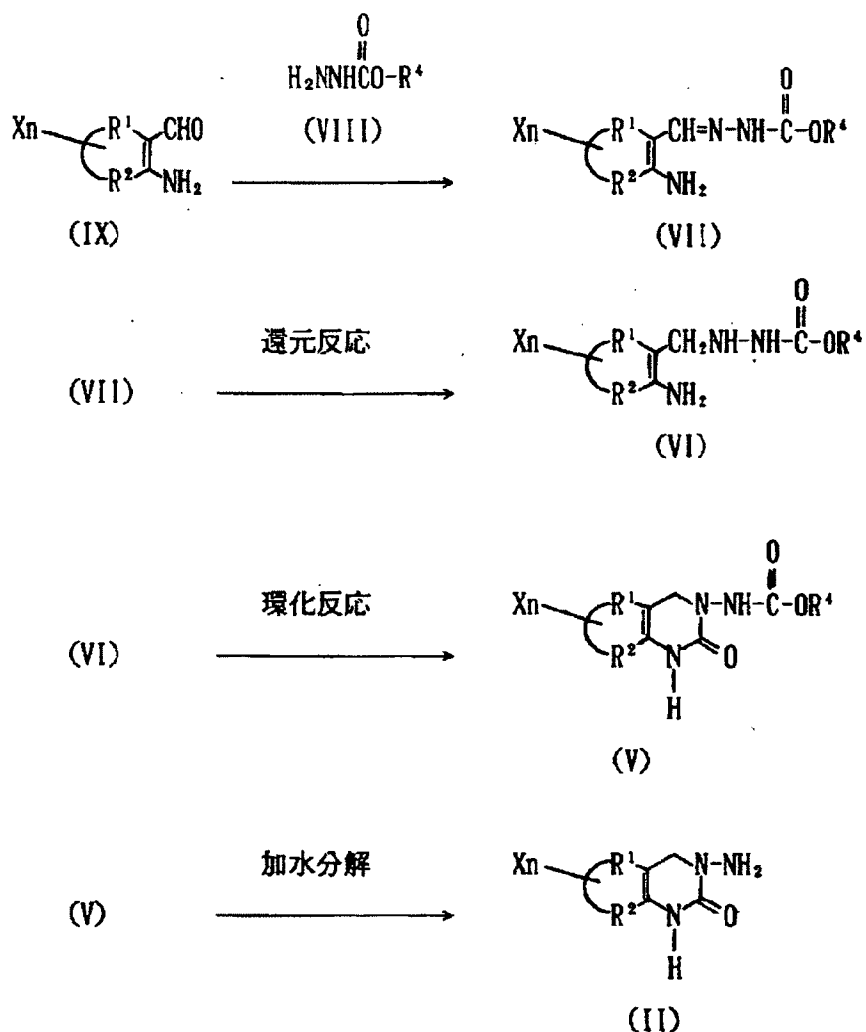
[0012] Passing by compound which is displayed with General Formula (II) which is a intermediate with manufacturing method which is shown on for example description below, it can produce condensed heterocycle derivative which is displayed with General Formula (I) of this invention. First, it can produce compound which is displayed with General Formula (II) which is a intermediate of this invention, with manufacturing method which is shown on for example description below.

## 【0013】製造方法1.

## [0013] Manufacturing method 1.

## 【化5】

## [Chemical Formula 5]



(式中、R、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、X及びnは前記に同じくし、R<sup>4</sup>はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基を示し、Halはハロゲン原子を示す。)

(In Formula, it designates R, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, the R<sup>3</sup>, X and n similarly as description above, the R<sup>4</sup> shows C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub> alkyl group, Hal shows halogen atom.)

【0014】一般式(IX)で表される化合物と一般式(VII)で表される化合物とを不活性溶媒及び触媒の存在下に反応させて一般式(VII)で表される化合物とし、該化合物(VII)を単離し又は単離せずして還元反応を行い、一般式(VI)で表される化合物とし、該化合物(VI)を単離し又は単離せずして環化反応を行い、一般式(V)で表される化合物とし、該化合物(V)を単離し又は単離せずして加水分解反応を行うことにより一般式(II)で表される化合物を製造することができる。本反応は特開平8-32

[0014] Compound which reacting under existing of inert solvent and catalyst, is displayed compound which is displayed with General Formula (IX) and compound which is displayed with General Formula (VII) with General Formula (VII) to do, It isolates said compound (VII) and or does not to isolate reduction reaction does, the compound which is displayed with General Formula (VI) it makes, said compound (VI) isolates or not to isolate does cyclization reaction does, compound which is displayed with General Formula (V) it makes, said compound

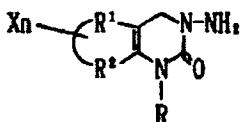
5239号公報に開示の製造方法に準じて製造することができる。

【0015】上記反応の出発物質である一般式(IX)で表される化合物は公知の方法に準じて得られ、例えばJ. Chem. Soc., 1045(1956)、J. Chem. Soc., 1372(1960)、J. Chem. Soc., 386(1943)、Ber., 100, 3664(1967)等の方法に準じて合成される。

【0016】以下に本発明の一般式(II)で表される化合物の代表例を第1表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

一般式(II)

【化6】



(II)

【0017】

(V) isolates or not to isolate does the compound which is displayed with General Formula (II) by doing hydrolysis reaction it can produce. It can produce this reaction in Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-325239 disclosure according to manufacturing method of disclosure.

[0015] Compound which is displayed with General Formula (IX) which is a starting substance of above-mentioned reaction is acquired according to known method, is synthesized according to for example Journal of the Chemical Society (JCSIA), 1045(1956), Journal of the Chemical Society (JCSIA), 1372(1960), Journal of the Chemical Society (JCSIA), 386(1943) and the Ber., 100, 3664(1967) or other method.

[0016] Representative example of compound which below is displayed with General Formula (II) of the invention is illustrated to Table 1, but this invention is not something which is limited in these.

General Formula (II)

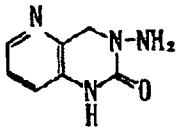
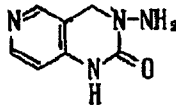
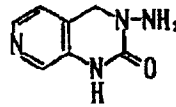
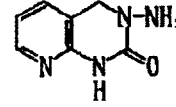
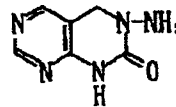
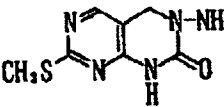
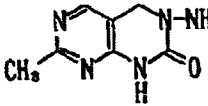
[Chemical Formula 6]

[0017]

【表 1】

[Table 1]

第 1 表

化合物No.	構造式	物 性
II- 1		
II- 2		
II- 3		
II- 4		[NMR (DMSO-d <sub>6</sub> /TMS, $\delta$ 値(ppm))] 4.0 ~ 4.5(brs, 2H), 4.57(s, 2H), 8.99(dd, 1H), 7.64(d, 1H), 8.19(d, 1H), 10.84(brs, 1H)
II- 5		
II- 6		
II- 7		[NMR (DMSO-d <sub>6</sub> /TMS, $\delta$ 値(ppm))] 4.0 ~ 4.5(brs, 2H), 2.50(s, 3H), 4.57(s, 2H), 8.20(s, 1H), 10.80(brs, 1H)

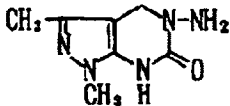
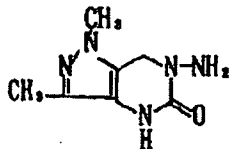
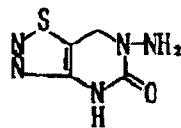
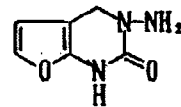
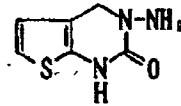
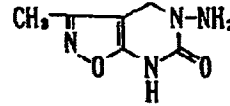
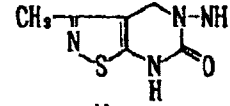
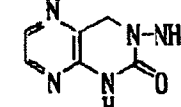
【0018】

[0018]

【表 2】

[Table 2]

第 1 表 (続き)

化合物No.	構造式	物 性
II-8		
II-9		
II-10		
II-11		
II-12		
II-13		
II-14		
II-15		

【0019】次に本発明の一般式(I)で表される縮合複素環誘導体又はその塩の代表的な製造方法を以下に図式的に示す。

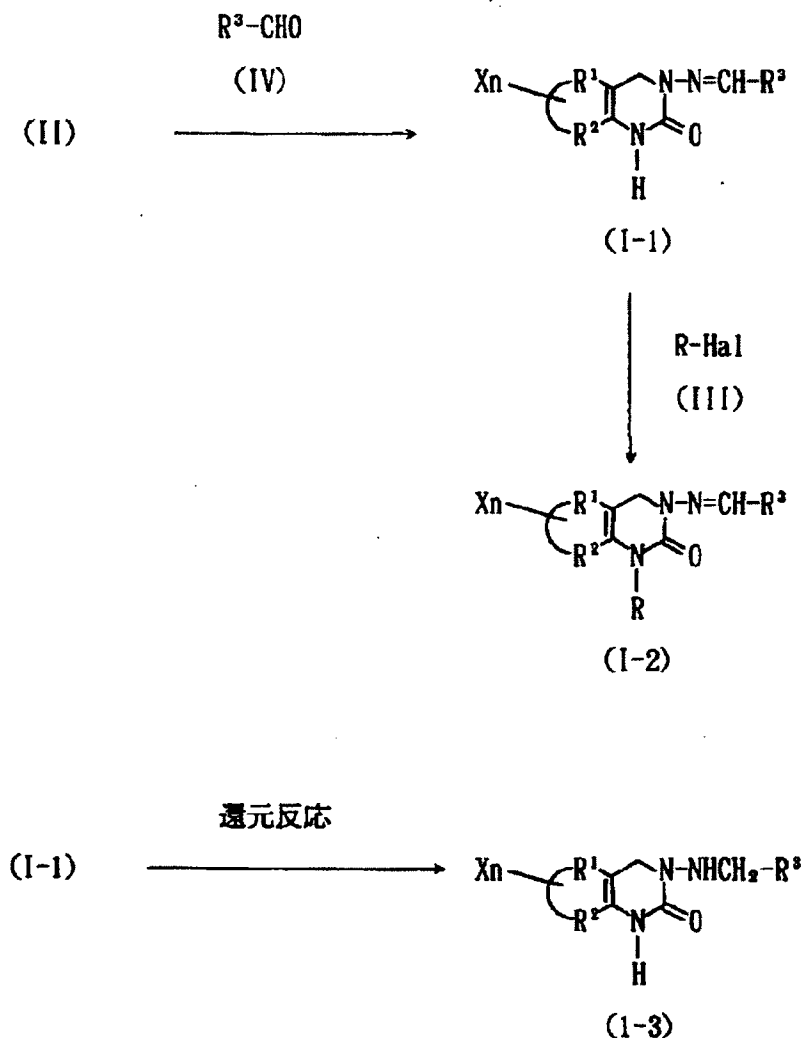
[0019] Representative manufacturing method of condensed heterocycle derivative or its salt which is displayed next with General Formula (I) of the this invention is shown diagram below.

## 製造方法 2.

## Manufacturing method 2.

【化 7】

[Chemical Formula 7]



(式中、R、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、X 及び n は前記に同じくし、Hal はハロゲン原子を示す。)

(In Formula, it designates R, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, the R<sup>3</sup>, X and n similarly as description above, the Hal shows halogen atom.)

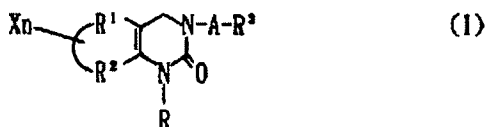
【0020】先に製造方法1で得られた一般式(I)で表される化合物を一般式(IV)で表される化合物と反応させることにより一般式(I-1)で表される縮合複素環誘導体を製造し、さらに該縮合複素環誘導体(I-1)と一般式(II)で表されるハライド類とを反応させることにより、一般式(I-2)で表される縮合複素環誘導体を製造することができる。又、得られた一般式(I-1)で表される縮合複素環誘導体を還元反応することにより、一般式(I-3)で表される縮合複素環誘導体を製造することができる。本反応は特開平8-325239号公報に開示の製造方法に準じて製造することができる。

[0020] First, condensed heterocycle derivative which is displayed with General Formula (I-1) by reacting with the compound which is displayed with the General Formula (IV) which is acquired with manufacturing method 1 with General Formula (II) can be produced, furthermore condensed heterocycle derivative which is displayed with said condensed heterocycle derivative (I-1) and general formula (III) with General Formula (I-2) by reacting, can be produced. condensed heterocycle derivative which is displayed with General Formula (I-3) also, by reduction reaction doing condensed heterocycle derivative which

【0021】以下に本発明の一般式(I)で表される縮合複素環誘導体又はその塩類の代表例を第2表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

一般式(I)

【化8】



【0022】

is displayed with General Formula (I-1) which is acquired, can be produced. It can produce this reaction in Japan Unexamined Patent Publication Hei 8 - 325239 disclosure according to manufacturing method of disclosure.

[0021] Representative example of condensed heterocycle derivative or its salt which below are displayed with General Formula (I) of the this invention is illustrated to Table 2, but this invention is not something which is limited in these.

General Formula (I)

[Chemical Formula 8]

[0022]

【表 3】

[Table 3]

第 2 表

化合物No.	構造式	物 性
1		
2		
3		
4		m. p. 253.2~255.0 °C
5		
6		
7		m. p. > 300°C [NMR (DMSO-d <sub>6</sub> /TMS, δ 値 (ppm))] 2.50 (s, 3H). 4.95 (s, 2H). 7.5 (dd, 1H). 8.11 (s, 1H). 8.16 (m, 1H). 8.39 (s, 1H). 8.62 (m, 1H). 8.90 (d, 1H). 10.75 (brs, 1H)

【 0 0 2 3 】

[0023]



【表 4】

[Table 4]

第 2 表 (続き)

化合物No.	構造式	物 性
8		
9		
10		
11		
12		
13		
14		
15		

【0024】

【実施例】 以下に本発明の代表的な実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0024]

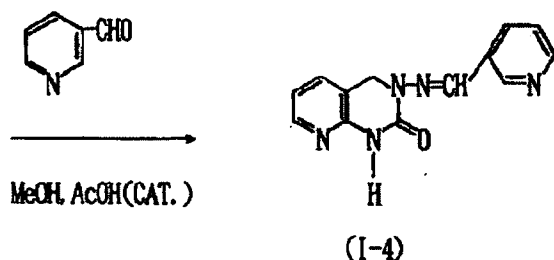
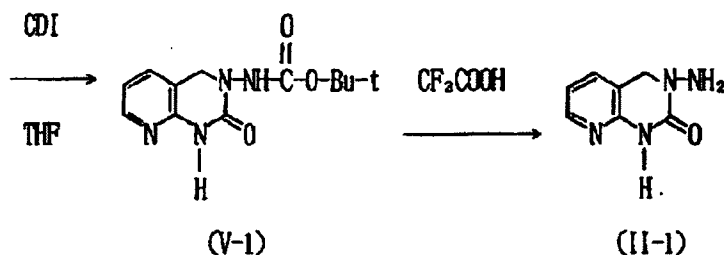
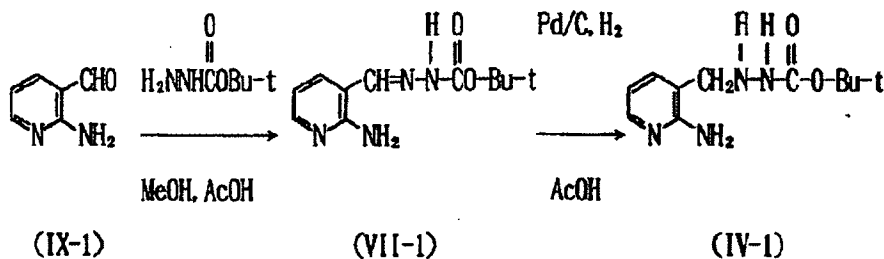
[Working Example(s)] Representative Working Example of this invention is shown below, but this invention is not something which is limited in these.

実施例 1. 3,4-ジヒドロ-3-(ピリジルメチリデンアミノ)-ピリド[2,3-d]ピリミジン-2-オンの製造

Production of Working Example 1. 3,4-di hydro-3-(pyridyl methyldene amino)-pyrido (2,3-d) pyrimidine-2-on

【化 9】

[Chemical Formula 9]



【0025】1-1. t-ブチル 2-(2-アミノピリジル-3-メチリデン)カルバジン酸の製造

[0025] Production of 1-1. t-butyl 2-(2-amino pyridyl-3 methyldene) carbazic acid

2.30g (18.8ミリモル)の2-アミノピリジン-3-アルデヒドと2.48g (18.8ミリモル)のt-ブチルカルバジン酸及び1滴の酢酸を20mlのメタノールに加え、5時間加熱還流下に反応を行った。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、析出した結晶を濾集して目的物4gを得た。

2-amino pyridine-3-aldehyde of 2.30g(18.8 millimole) and t-butyl carbazic acid of 2.48g(18.8 millimole) and acetic acid of the 1 drop in addition to methanol of 20 ml, it reacted under the 5 hours heating and refluxing. After reaction termination, it removed solvent under vacuum, filtering the crystal which was precipitated, it acquired object compound 4g.

$^1\text{H-NMR}$  [ $\text{CDCl}_3/\text{TMS}$ ,  $\delta$  値(ppm)]

$^1\text{H-nmr}$  [ $\text{CDCl}_3/\text{TMS}$  and value (ppm)]

1.45(s, 9H), 6.60(dd, 1H), 7.4(brs, 2H), 7.45(dd, 1H), 7.95(dd, 1H), 8.00(brs, 1H), 11.0(brs, 1H)

1.45(s, 9H), 6.60(dd, 1H), 7.4(brs, 2H), 7.45(dd, 1H), 7.95(dd, 1H), 8.00(brs, 1H), 11.0(brs, 1H)

収率: 90%

Yield: 90%

ISTA's Paterra(tm), Version 1.5 (There may be errors in the above translation. ISTA cannot be held liable for any detriment from its use. WWW: <http://www.intlscience.com> Tel: 800-430-5727)

P.18

[0026] 1-2. t-ブチル 2-(2-アミノピリジル-3-メチル)カルバジン酸の製造

1-1で得られたt-ブチル 2-(2-アミノピリジル-3-メチリデン)カルバジン酸2g(8.5ミリモル)と0.2gの5%パラジウムカーボンを20mlの酢酸に加え、4~5 kg/m<sup>2</sup>で接触還元を行った。水素吸収が止まった後、触媒を濾去し、溶媒を減圧下に留去して目的物2.0gを得た。

<sup>1</sup>H-NMR[CDCl<sub>3</sub>/TMS, δ値(ppm)]

1.46(s, 9H), 3.95(d, 2H), 4.05(brs, 1H), 5.35(brs, 2H), 6.10(brs, 1H), 6.60(dd, 1H), 7.30(dd, 1H), 8.02(d, 1H)

収率: 定量的

[0027] 1-3. 3,4-ジヒドロ-3-(t-ブトキシカルボニルアミノ)-ピリド[2,3-d]ピリミジン-2-オンの製造。

1-2で得られたt-ブチル 2-(2-アミノピリジル-3-メチル)カルバジン酸2g(8.5ミリモル)と1.38g(8.5ミリモル)の1,1'-カルボニルビス-1H-イミダゾール(CDI)を20mlの乾燥したテトラヒドロフラン中に溶解し、5時間加熱還流下に反応を行った。反応終了後、反応液を30mlの水に注ぎ、目的物をクロロホルム各30mlで3回抽出した。合した抽出液を、飽和食塩水で洗浄して無水硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒を減圧下に留去し、残渣を酢酸エチルで結晶化して目的物0.8gを得た。

<sup>1</sup>H-NMR[CDCl<sub>3</sub>/TMS, δ値(ppm)]

1.50(s, 9H), 4.76(s, 1H), 6.78(brs, 1H), 6.98(dd, 1H), 7.37(d, 1H), 8.21(d, 1H), 8.75(brs, 1H)

収率: 35%

[0028] 1-4. 3,4-ジヒドロ-3-アミノ-ピリド[2,3-d]ピリミジン-2-オンの製造

1-3で得られた3,4-ジヒドロ-3-(t-ブトキシカルボニルアミノ)-ピリド[2,3-d]ピリミジン-2-オン0.8g(3ミリモル)を5mlのトリフルオロ酢酸中に0℃に加え、その後室温にて1時間反応させた。反応終了後溶媒を減圧下に留去し、残渣をエタノールで再結晶化して目的物0.35gを得た。

<sup>1</sup>H-NMR[CDCl<sub>3</sub>/TMS, δ値(ppm)]

[0026] Production of 1-2. t-butyl 2-(2-amino pyridyl-3 methyl) carbazic acid

Catalytic reduction was done with 4 to 5 kg/m<sup>2</sup> in addition t-butyl 2-(2-amino pyridyl-3 methylidene) carbazic acid 2g(8.5 millimole) and the 5% palladium carbon of 0.2g which are acquired with 1-1 to in the acetic acid of 20 ml. After hydrogen absorption stops, catalyst was filtered, solvent was removed under vacuum and object compound 2.0g was acquired.

<sup>1</sup>H-nmr [CDCl<sub>3</sub>/TMS and value(ppm)]

1.46(s, 9H), 3.95(d, 2H), 4.05(brs, 1H), 5.35(brs, 2H), 6.10(brs, 1H), 6.60(dd, 1H), 7.30(dd, 1H), 8.02(dd, 1H)

Yield: Quantitative

[0027] Production of 1-3. 3,4-di hydro-3-(t-butoxycarbonyl amino)-pyrido (2,3d) pyrimidine-2-on.

It melted in t-butyl 2-(2-amino pyridyl-3 methyl) carbazic acid 2g(8.5 millimole) and in is acquired with 1-2 the tetrahydrofuran which where 20 ml dries 1, 1'-carbonyl bis-1H-imidazole (CDI) of 1.38g(8.5 millimole) reacted under 5 hours heating and refluxing. After reaction termination, reaction mixture was poured to water of 30 ml, the object compound thrice was extracted with chloroform each 30 ml. Washing extracted liquid which combination is done, with saturated saline, with the anhydrous magnesium sulfate after drying, it removed solvent under vacuum, crystallization did residue with ethyl acetate and acquired object compound 0.8g.

<sup>1</sup>H-nmr [CDCl<sub>3</sub>/TMS and value(ppm)]

1.50(s, 9H), 4.76(s, 1H), 6.78(brs, 1H), 6.98(dd, 1H), 7.37(d, 1H), 8.21(d, 1H), 8.75(brs, 1H)

Yield: 35%

[0028] Production of 1-4. 3,4-di hydro-3-amino-pyrido (2,3-d) pyrimidine-2-on

In trifluoroacetic acid of 5 ml it added 3,4-di hydro-3-(t-butoxycarbonyl amino)-pyrido (2,3-d) pyrimidine-2-on 0.8g(3 millimole) which is acquired with 1-3 with 0℃, after that the 1 hour reacted with room temperature. solvent after reaction termination was removed under vacuum, residue there crystallization was done with ethanol and object compound 0.35g was acquired.

<sup>1</sup>H-nmr [CDCl<sub>3</sub>/TMS and value(ppm)]

4.0~4.5(brs, 2H), 4.57(s, 1H), 6.99(dd, 1H), 7.64(d, 1H), 8.13(d, 1H) 10.34(brs, 1H)

収率: 71%

【0029】1-5. 3,4-ジヒドロ-3-(ピリジルメチリデンアミノ)-ピリド〔2,3-d〕ピリミジン-2-オンの製造

1-4で得られた3,4-ジヒドロ-3-アミノ-ピリド〔2,3-d〕ピリミジン-2-オン0.3g(1.8ミリモル)と0.2g(1.8ミリモル)のニコチン酸アルデヒド及び1滴の硫酸を10mlのメタノールに加え、3時間加熱還流下に反応させた。反応終了後、反応液を室温に冷却し、析出した結晶を濾集し、目的物0.35gを得た。

物性: m. p. 253.2~255.0°C

<sup>1</sup>H-NMR [DMSO-d<sub>6</sub>/TMS, δ 値 (ppm)]

2.50(s, 3H), 4.95(s, 2H), 7.5(dd, 1H), 8.11(s, 1H), 8.16(m, 1H), 8.39(s, 1H), 8.62(m, 1H), 8.90(d, 1H), 10.75(brs, 1H)

収率: 76%

【0030】本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体を有効成分とする有害生物防除剤は水稻、野菜、果樹、その他の作物及び花卉等を加害する各種農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等の害虫防除に適しており、例えばチャノミドリヒメヨコバイ (*Empoasca brassicae*)、ツマグロヨコバイ (*Nephotettix cincticeps*)、トビロウンカ (*Nilaparvata lugens*)、セジロウンカ (*Sogatella furcifera*)、ミカンキジラミ (*Diaphorina citri*)、ミカンコナジラミ (*Dialeurodes citri*)、タバココナジラミ (*Bemisia tabaci*)、オンシツコナジラミ (*Trialeurodes vaporariorum*)、ダイコンアブラムシ (*Brevicoryne brassicae*)、ワタアブラムシ (*Aphis gossypii*)、ムギクビレアブラムシ (*Rhopalosiphum padi*)、モモアブラムシ (*Myzus persicae*)、ツノロウムシ (*Ceroplastes cerciferus*)、ミカンワタカイガラムシ (*Pulvinaria aurantii*)、ミカンマルカイガラムシ (*Pseudonidia duplex*)、ナシマルカイガラムシ (*Comstockaspis perniciosus*)、ヤノネカイガラムシ (*Unaspis yanonensis*)、等の半翅目害虫、

4.0 to 4.5(brs, 2H), 4.57(s, 1H), 6.99(dd, 1H), 7.64(d, 1H), 8.13(d, 1H) 10.34(brs, 1H)

Yield: 71%

[0029] Production of 1-5. 3,4-di hydro-3-(pyridyl methylene amino)-pyrido (2,3-d) pyrimidine-2-on

It reacted under 3 hours heating and refluxing 3,4-di hydro-3-amino-pyrido (2,3-d) pyrimidine-2-on 0.3g (1.8 millimole) and nicotinic acid aldehyde of 0.2g (1.8 millimole) and sulfuric acid of 1 drop which are acquired with 1-4 in addition to methanol of 10 ml. After reaction termination, reaction mixture was cooled in room temperature, crystal which was precipitated was filtered, object compound 0.35g was acquired.

Property: Mp. 253.2 to 255.0 °C

<sup>1</sup>H-nmr [DMSO-d<sub>6</sub>/TMS and value (ppm)]

2.50(s, 3H), 4.95(s, 2H), 7.5(dd, 1H), 8.11(s, 1H), 8.16(m, 1H), 8.39(s, 1H), 8.62(m, 1H), 8.90(d, 1H), 10.75(brs, 1H)

Yield: 76%

[0030] As for pest control agent which designates condensed heterocycle derivative which is displayed with the General Formula (I) of this invention as active ingredient rice, Various Norin which vegetable, fruit tree, other crop and the ornamental flower etc adding are harmed, we to be suitable for horticulture, the stored grain insect and hygienically harmful insect or nematode or other pest elimination, for example *Empoasca onukii* Matsuda (tea green leafhopper) (*Empoasca brassicae*), *Nephotettix cincticeps* (Uhler) (green rice leafhopper) (*Nephotettix cincticeps*), *Nilaparvata lugens* (Stal) (brown rice planthopper) (*Nilaparvata lugens*), the *Sogatella furcifera* (Horvath) (whitebacked rice planthopper) (*Sogatella furcifera*), *Diaphorina citri* Kuwayama citrus psylla (*Diaphorina citri*), *Dialeurodes citri* [Ashmead] (citrus whitefly) (*Dialeurodes citri*), *Bemisia tabaci* (Gennadius) (sweetpotato whitefly) (*Bemisia tabaci*), *Trialeurodes vaporariorum* (Westwood) (greenhouse whitefly) (*Trialeurodes vaporariorum*), *Brevicoryne brassicae* [Linnaeus] (cabbage aphid) (*Brevicoryne brassicae*), the *Aphis gossypii* Glover (cotton aphid) (*Aphis gossypii*), *Rhopalosiphum padi* (Linnaeus) (wheat aphid) (*Rhopalosiphum padi*), *Myzus persicae* (Sulzer) (green peach aphid) (*Myzus persicae*), *Ceroplastes cerciferus* [Fabricius] (Indian wax scale) (*Ceroplastes cerciferus*), *Pulvinaria aurantii* Cockerell (cottony citrus scale) (*Pulvinaria aurantii*), *Pseudonidia duplex* [Cockerell] (camphor scale) (*Pseudonidia duplex*), the *Comstockaspis*

【0031】ミナミネグサレセンチュウ (*Pratylenchus coffeae*)、ジャガイモシストセンチュウ (*Globodera rostochiensis*)、ネコブセンチュウ (*Meloidogyne* sp.)、ミカンネセンチュウ (*Tylenchulus semipenetrans*)、ニセネグサレセンチュウ (*Aphelenchus avenae*)、ハガレセンチュウ (*Aphelenchoides ritzemabosi*) 等のハリセンチュウ目に対しても殺虫効果を有するものである。尚、学名等は農林有害動物・昆虫名鑑1987年版(日本応用動物昆虫学会編)による。

【0032】本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体またはその塩類を有効成分として含有する有害生物防除剤は、水稻、野菜、果樹、その他の作物及び花卉等を加害する前記害虫或いは衛生害虫に対して顕著な殺虫活性を有するものである。害虫類の発生が予測される時期に合わせて、害虫類の発生前又は発生が確認された時点で水稻、果樹、野菜その他の作物、花卉等に対し水田水、茎葉又は土壌等及び衛生害虫にあつては人畜に加害する家屋内、家屋周辺の溝等に処理することにより本発明の殺虫剤の所期の効果が奏せられるものであるが、本発明はこれらの態様のみに限定されるものではない。

【0033】本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体またはその塩類を有害生物防除剤として使用する場合、農薬製剤上の常法に従い、使用上都合の良い形状に製剤して使用するのが一般的である。即ち、本発明の一般式(1)で表される縮合複素環化合物又はその塩類は、これらを適当な不活性担体に、また必要に応じて補助剤と一緒に、適当な割合に配合して溶解、分離、懸濁、混合、含浸、吸着させ、適宜の剤形、例えば懸濁剤、乳剤、液剤、水和剤、粒剤、粉剤、錠剤等に製剤して使用すれば良い。本発明で使用できる不活性担体としては固体又は液体の何れであっても良く、固体の担体になりうる材料としては、例えばダイズ粉、穀物粉、木粉、樹皮粉、鋸屑、タバコ茎粉、クルミ粉、ふすま、繊維素粉末、植物エキスを抽出後の残渣、粉碎合成樹脂等の合成重合体、粘土類(例えばカオリン、ベントナイト、酸性白土等)、タルク類(例えばタルク、ピロフィライト等)、シリカ類(例えば珪藻土、珪砂、雲母、ホワイトカーボン〔含水微粉珪素、含水珪酸ともいわれる合成高分

perniciosa [Comstock] (San Jose scale) (Comstock aspidiot perniciosus), *Unaspis yanonensis* (Kuwana) (arrowhead scale) (*Unaspis yanonensis*) and or other Hemiptera insect pest,

[0031] It is something which possesses insecticidal effect vis-a-vis *Pratylenchus coffeae* [Zimmermann] Filipjev et Schuurmans Stekhoven (coffee root-lesion nematode) (*Pratylenchus coffeae*), the *Globodera rostochiensis* Wollenweber (potato cyst nematode) (*Globodera rostochiensis*), *Meloidogyne* sp. (root-knot nematode) (*Meloidogyne* sp.), *Tylenchulidae* (citrus nematode) (*Tylenchulus semipenetrans*), *Aphelenchus avenae* Bastian (*Aphelenchus avenae*) and *Aphelenchoides ritzemabosi* [Schwartz] Steiner et Buhner (chrysanthemum foliar nematode) (*Aphelenchoides ritzemabosi*) or other *Tylenchida*. Furthermore as for scientific name etc with Norin pest \* insect directory 1987 edition (Japan applied animal entomology meeting compilation).

[0032] As for pest control agent which contains condensed heterocycle derivative or its salt which are displayed with the General Formula (I) of this invention as active ingredient rice, vegetable, fruit tree, It is something which possesses marked insecticidal activity other crop and ornamental flower etc adding aforementioned is harmed insect pest or vis-a-vis hygienically harmful insect because, In time where occurrence of insect pest is estimated adjusting, pregermination or of insect pest with time point where occurrence was verified the rice, rice paddy water, foliage or soil etc and being in hygienically harmful insect vis-a-vis the fruit tree, vegetable other crop and ornamental flower etc it is something where anticipated effect of insecticide of this invention plays adding inside the house which you harm, by treating in groove etc of house periphery in the humans and livestock, but this invention is not something where are limited in only these embodiment.

[0033] When condensed heterocycle derivative or its salt which are displayed with General Formula (I) of this invention you use, as pest control agent formulation doing in shape whose in regard to use are convenient in accordance with conventional method on pesticide formulation, it is general to use. Namely, these in addition combining condensed heterocycle compound or its salt which are displayed with the General Formula (I) of this invention, to suitable ratio melting in according to need auxiliary agent and simultaneous, in suitable inactive carrier, separation, suspension, mixture, impregnating, adsorbing, appropriate formulation, formulation doing in the for example suspension agent, emulsion, liquid, wettable powder, granule, powder and the tablets etc if you use, it is good. As inactive carrier which can be used with this invention with which of solid or liquid good, Can become support of solid as material which, for example soybeans powder, grain powder, wood flour, bark powder, residue after sawdust, tobacco stem powder, walnut flour, bran, cellulose powder and plant extract

子珪酸で、製品により珪酸カルシウムを主成分として含むものもある。〕)、活性炭、イオウ粉末、軽石、焼成珪藻土、レンガ粉砕物、フライアッシュ、砂、炭酸カルシウム等の無機鉱物性粉末、硫酸、燐安、硝安、塩安等の化学肥料、堆肥等を挙げることができ、これらは単独若しくは二種以上の混合物の形で使用される。

【0034】液体の担体になりうる材料としては、それ自体溶媒能を有するものの他、溶媒能を有さずとも補助剤の助けにより有効成分を分散させることとなるものから選択され、例えば代表例として次に挙げる担体を例示できるが、これらは単独若しくは二種以上の混合物の形で使用され、例えば水、アルコール類、（例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール等）、ケトン類、（例えばアセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等）、エーテル類（例えばエチルエーテル、ジオキサン、セロソルブ、ジブロピルエーテル、テトラヒドロフラン等）、脂肪族炭化水素類（例えばケロシン、鉱油等）、芳香族炭化水素類（例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、アルキルナフタレン等）、ハロゲン化炭化水素類（例えばジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、塩素化ベンゼン等）、エステル類（例えば酢酸エチル、ジイソブチルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等）、アミド類（例えばジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等）、ニトリル類（例えばアセトニトリル等）、ジメチルスルホキシド類等を挙げることができる。他の補助剤としては次に例示する代表的な補助剤を挙げることができ、これらの補助剤は目的に応じて使用され、単独で、ある場合は二種以上の補助剤を併用し、又ある場合には全く補助剤を使用しないことも可能である。

【0035】有効成分化合物の乳化、分散、可溶化及び／又は湿潤の目的のために界面活性剤が使用され、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシエチレン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン樹脂酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレエート、アルキル

extraction, powder fragment synthetic resin or other synthetic polymer and clays (Such as for example kaolin, bentonite and acidic clay), talcs (Such as for example talc and pyro filler イド), the silica (There are also some which include calcium silicate as main component for example diatomaceous earth, the silica sand, mica and white carbon (the containing water fine powder silicon and hydrated silicic acid with the synthetic polymer silicic acid which is said, due to product. )), activated carbon, sulfur powder, pumice and calcining diatomaceous earth, the brick milled product, fly ash, sand, calcium carbonate or other inorganic mineral powder, ammonium sulfate, ammonium phosphate, the ammonium nitrate, ammonium chloride or other chemical fertilizer and compost etc are listed, it is possible densely, these are used in form of blend of alone or 2 kinds or more.

[0034] Can become support of liquid as material which, Possess that itself solvent talent other than those which, Also not possessing solvent talent, dispersing effective component due to help of auxiliary agent, it is selected from those which means with to be possible, support which is listed next as for example representative example can be illustrated, but these are used in form of blend of alone or 2 kinds or more, the for example water, alcohols, (Such as for example methanol, ethanol, isopropanol, butanol and ethyleneglycol), ketones, (Such as for example acetone, methylethylketone, methyl isobutyl ketone, diisobutyl ketone and cyclohexanone), ethers (Such as for example ethyl ether, dioxane, cellosolve, dipropyl ether and tetrahydrofuran), aliphatic hydrocarbons (Such as for example kerosine and mineral oil), the aromatic hydrocarbons (Such as for example benzene, toluene, xylene, solvent naphtha and alkyl naphthalene), halogenated hydrocarbons (Such as for example dichloroethane, chloroform, carbon tetrachloride and chlorination benzene), esters (for example ethyl acetate and diisobutyl phthalate, such as dibutyl phthalate and dioctyl phthalate), amides (Such as for example dimethylformamide, diethyl formamide and dimethylacetamide), nitriles (Such as for example acetonitrile), the dimethyl sulfoxide etc can be listed. representative auxiliary agent which is illustrated next as other auxiliary agent is listed, it is possible densely, also it is possible these auxiliary agent to be used according to object, with alone, in case of a certain to jointly use auxiliary agent of 2 kinds or more, in addition in case of a certain completely not to use auxiliary agent.

[0035] Surfactant is used because of object of emulsification, dispersion and solubilizing and/or wetting of effective component compound, for example polyoxyethylene alkyl ether, polyoxyethylene alkyl aryl ether, polyoxyethylene higher fatty acid ester, the polyoxyethylene resin acid ester, polyoxyethylene sorbitan monolaurate, polyoxyethylene sorbitan mono oleate, alkylaryl sulfonic acid salt,

アリールスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸縮合物、リグニンスルホン酸塩、高級アルコール硫酸エステル等の界面活性剤を例示することができる。又、有効成分化合物の分散安定化、粘着及び／又は結合の目的のために、次に例示する補助剤を使用することもでき、例えばカゼイン、ゼラチン、澱粉、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、松根油、糠油、ベントナイト、リグニンスルホン酸塩等の補助剤を使用することもできる。

【0036】固体製品の流動性改良のために次に挙げる補助剤を使用することもでき、例えばワックス、ステアリン酸塩、磷酸アルキルエステル等の補助剤を使用できる。懸濁性製品の解こう剤として、例えばナフタレンスルホン酸縮合物、縮合磷酸塩等の補助剤を使用することもできる。消泡剤としては、例えばシリコン油等の補助剤を使用することもできる。有効成分化合物の配合割合は必要に応じて加減することができ、例えば粉剤或いは粒剤とする場合は0.01～50重量%、又乳剤或いは水和剤とする場合も同様0.01～50重量%が適当である。

【0037】本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は、各種害虫を防除するために、そのまま、又は水等で適宜希釈し、若しくは懸濁させた形で害虫防除に有効な量を当該害虫の発生が予測される作物若しくは発生が好ましくない場所に適用して使用すれば良い。本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤の使用量は、種々の因子、例えば目的、対象害虫、作物の生育状況、害虫の発生傾向、天候環境条件、剤型施用方法、施用場所、施用時期等により変動するが、有効成分化合物として10アール当たり0.01g～5kgの範囲から目的に応じて適宜選択すれば良い。本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は、更にその防除対象害虫、防除適期の拡大のため、或いは薬量の低減をはかる目的で、他の農園芸用殺虫剤又は殺菌剤と混合して使用することも可能である。以下に本発明の代表的な実施例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、処方例中、部とあるのは重量部を示す。

naphthalene sulfonic acid condensate, lignin sulfonate and the higher alcohol sulfuric acid ester or other surfactant is illustrated is possible densely. dispersion stabilization of also, effective component compound, because of object of sticking and/or connection, it can also use auxiliary agent which is illustrated next use for example casein, the gelatin, starch, methylcellulose, carboxymethyl cellulose, gum arabic, poly vinyl alcohol, the pine root oil, rice bran oil, bentonite and lignin sulfonate or other auxiliary agent also can.

[0036] It can also use auxiliary agent which is listed next because of flow improvement of the solid product for example wax, stearate and alkyl phosphate ester or other auxiliary agent can use. It can also use for example naphthalene sulfonic acid condensate and condensed phosphate or other auxiliary agent as agent which the suspensible product will be solved. As foam inhibitor, it can also use for example silicone oil or other auxiliary agent. When according to need allows proportion of active ingredient compound to be possible, makes the for example powder or granule densely, when 0.01 to 50 weight%, in addition it makes the emulsion or wettable, similar 0.01 to 50 weight% is suitable.

[0037] In order if to prevent various insect pest, that way, it illustrates the pest control agent which designates condensed heterocycle derivative or its salt being displayed with General Formula (I) of this invention as active ingredient, appropriately with, or water etc or in form which suspension it does it applies effective amount to the site where crop or occurrence where occurrence of the said insect pest is estimated are not desirable in pest elimination and uses it is good. usage of pest control agent which designates condensed heterocycle derivative or its salt which are displayed with General Formula (I) of this invention as active ingredient fluctuates growth condition of the various factor, for example objective, object insect pest and crop, tendency to occur of insect pest, with climate environmental condition, drug form application method, application site and application time etc, but as the active ingredient compound if it selects appropriately from range of per 10 are 0.01g to 5kg according to the objective, it is good. pest control agent which designates condensed heterocycle derivative or its salt which are displayed with the General Formula (I) of this invention as active ingredient, furthermore for expanding target insect pest and prevention suitable period, or with objective which assures decrease of dose, mixing with other horticultural insecticide or thermicrobicide, using is possible. representative Working Example and Test Example of this invention is shown below, but this invention is not something which is limited in these. Furthermore in formulation example, part shows parts by weight.

【0038】

## 処方例 1.

第2表記載の化合物  
50部キシレン  
40部

ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと

アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物  
10部

以上を均一に混合溶解して乳剤とする。

## 処方例 2.

第2表記載の化合物  
3部クレー粉末  
82部珪藻土粉末  
15部

以上を均一に混合粉碎して粉剤とする。

【0039】

## 処方例 3.

第2表記載の化合物  
5部ベントナイトとクレーの混合粉末  
90部リグニンスルホン酸カルシウム  
5部

以上を均一に混合し、適量の水を加えて混練し、造粒、乾燥して粒剤とする。

## 処方例 4.

第2表記載の化合物  
20部カオリンと合成高分散珪酸  
75部

ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルとアル

[0038]

## Formulation example 1.

It stated in Table 2 compound 50 part

Xylene 40 part

Polyoxyethylene nonyl phenyl ether

Blend 10 part of calcium alkylbenzenesulfonate

Above mixing melting in uniform, it makes emulsion.

## Formulation example 2.

It stated in Table 2 compound 3 part

Clay powder 82 part

Diatomaceous earth powder 15 part

Mixing and pulverization doing above in uniform, it makes powder.

[0039]

## Formulation example 3.

It stated in Table 2 compound 5 part

Mixed powder 90 part of bentonite and clay

Calcium lignin sulfonate 5 part

It mixes above to uniform, granulating, drying including water of the suitable amount kneading, it makes granule.

## Formulation example 4.

It stated in Table 2 compound 20 part

Kaolin and synthetic high dispersion silicic acid 75 part

Polyoxyethylene nonyl phenyl ether ar-



キルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物  
5部

以上を均一に混合粉碎して水和剤とする。

【0040】試験例1. モモアカアブラムシ (*Myzus Persicae*) に対する防除価試験

直径8 cm、高さ8 cmのプラスチックポットにハクサイを植えてモモアカアブラムシを繁殖させ、それぞれのポットの寄生虫数を調査した。本発明の一般式(1)で表される縮合複素環化合物又はその塩類を水に分散させて500 ppmの薬液とし、該薬液をポット植えハクサイの茎葉に散布して風乾後、ポットを温室に保管し、薬剤散布後6日目にそれぞれのハクサイに寄生しているモモアカアブラムシの寄生虫数を調査し、下記の式より防除価を算出し、下記基準に従って判定を行った。

【0041】防除価 =  $100 - [(T \times Ca) / (Ta \times C)] \times 100$

Ta : 処理区の散布前寄生虫数

T : 処理区の散布後寄生虫数

Ca : 無処理区の散布前寄生虫数

C : 無処理区の散布期間後の寄生虫数

判定基準

A . . . 防除価100%

B . . . 防除価99%~90%

C . . . 防除価89%~80%

D . . . 防除価79%~50%

【0042】試験例2. トビイロウンカ (*Nilaparvata lugens*) に対する殺虫試験

本発明の一般式(1)で表される縮合複素環誘導体又はその塩類を水に分散させて500 ppmの薬液に希釈し、該薬液にイネ実生(品種: 日本晴)を30秒間浸漬し、風乾した後にガラス試験管に入れ、トビイロウンカ3

Blend 5 part of kill benzenesulfonic acid calcium

Mixing and pulverization doing above in uniform, it makes wettable.

[0040] For Test Example 1. *Myzus persicae* (Sulzer) (green peach aphid) (*Myzus Persicae*) protection value test

Planting Brassica spp. (Chinese cabbage) in plastic pot of diameter 8 cm and height 8 cm, *Myzus persicae* (Sulzer) (green peach aphid) propagating, you investigated number of parasites of respective pot. Dispersing condensed heterocycle compound or its salt which are displayed with General Formula (I) of this invention to water, reagent solution of 500 ppm to do, Scattering fabric doing said reagent solution in foliage of potplanting Brassica spp. (Chinese cabbage), after air dry, it kept pot in greenhouse, in the 6th day after agent spreading it investigated number of parasites of *Myzus persicae* (Sulzer) (green peach aphid) which the parasitism has been done in respective Brassica spp. (Chinese cabbage), calculated protection value from below-mentioned formula, followed to below-mentioned reference and decided.

[0041] Protection value =  $100 - ((T \times Ca) / (Ta \times C)) \times 100$

Ta: Before spreading number of parasites of treated plot

T: After spreading number of parasites of treated plot

Ca: Before spreading number of parasites of untreated plot

C: Number of parasites after scattering fabric time of untreated plot

Criteria

A \*\*\* protection value 100%

B \*\*\* protection value 99% to 90%

C \*\*\* protection value 89% to 80%

D \*\*\* protection value 79% to 50%

[0042] It confronts Test Example 2. *Nilaparvata lugens* (Stal) (brown rice planthopper) (*Nilaparvata lugens*) insecticidal test

Dispersing condensed heterocycle derivative or its salt which are displayed with General Formula (I) of this invention to water, it diluted in reagent solution of 500 ppm, 30 second soaked the rice seedling (variety: Nipponbare) in said reagent solution,

令幼虫を各10頭づつ接種した後に綿栓をし、接種8日後に生死虫数を調査し、死虫率を下記の式より算出し、下記の判定基準に従って判定を行った。

air dry after doing, it inserted in glass test tube, Nilaparvata lugens (Stal) (brown rice planthopper) third instar larvae each at a time 10 heads inoculation after doing, it did cotton plug, investigated number of living and dead insects after inoculation 8 day, calculated the insect mortality from below-mentioned formula, followed to below-mentioned criteria and decided.

【数1】

[Mathematical Formula 1]

$$\text{補正死虫率 (\%)} = \frac{\text{無処理区生存虫数} - \text{処理区生存虫数}}{\text{無処理区生存虫数}} \times 100$$

処理区生存率判定基準・・・試験例1に同じ。

Same to treated plot survival rate criteria \*\*\* Test Example 1.

【0043】結果、本発明の一般式(1)で示される縮合複素環誘導体を有効成分とする有害生物防除剤で、化合物No. 4、7の化合物はモモアカアブラムシに対してA以上の活性を示し、化合物No. 4、7の化合物はトビイロウンカに対してD以上の活性を示した。

[0043] With pest control agent which designates condensed heterocycle derivative which is shown with the General Formula (I) of result and this invention as active ingredient, compound of compound No. 4 and the 7 showed activity of A or greater vis-a-vis Myzus persicae (Sulzer) (green peach aphid), compound of compound No. 4 and 7 showed activity of D or greater vis-a-vis the Nilaparvata lugens (Stal) (brown rice planthopper).

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**